

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-260681

(43)Date of publication of application : 13.09.2002

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
 C22C 19/03  
 C22F 1/10  
 C22F 1/18  
 H01M 8/10  
 // C22F 1/00

(21)Application number : 2001-055403

(71)Applicant : DAIDO STEEL CO LTD

(22)Date of filing : 28.02.2001

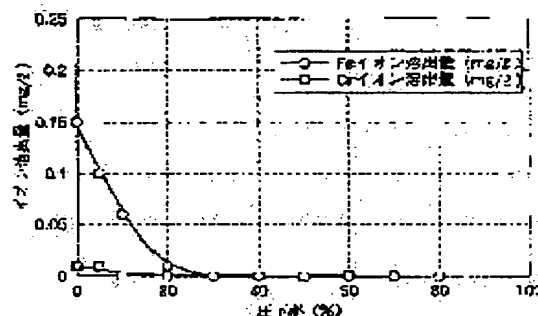
(72)Inventor : YOSHIDA HIROAKI  
 SUZUKI YOSHITAKE  
 TAKAGI SHINOBU

(54) METALLIC SEPARATOR FOR SOLID HIGH POLYMER FUEL CELL, AND METHOD OF MANUFACTURING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a metallic separator for a solid high polymer fuel cell, and a manufacturing method therefor for reducing the contact electrical resistance, improving corrosion resistance, and reducing the cost.

SOLUTION: This metallic separator for the solid high polymer fuel cell has a noble metal layer, such as Au, provided on a surface of a metal plate, such as an Fe group alloy, and these are turned into a clad by performing rolling work at a draft rate not less than 5%, and a flowing passage is arranged for passing fuel gas or oxidizing gas.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-260681

(P2002-260681A)

(43) 公開日 平成14年9月13日 (2002.9.13)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード* (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 5 H 0 2 6
C 2 2 C 19/03		C 2 2 C 19/03	M
C 2 2 F 1/10		C 2 2 F 1/10	A
	1/18		H
H 0 1 M 8/10		H 0 1 M 8/10	

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-55403 (P2001-55403)

(22) 出願日 平成13年2月28日 (2001.2.28)

(71) 出願人 000003713

大同特殊鋼株式会社

愛知県名古屋市中区錦一丁目11番18号

(72) 発明者 吉田 広明

愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地

大同特殊鋼株式会社技術開発研究所内

(72) 発明者 鈴木 良剛

愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地

大同特殊鋼株式会社技術開発研究所内

(74) 代理人 100104123

弁理士 荒崎 勝美

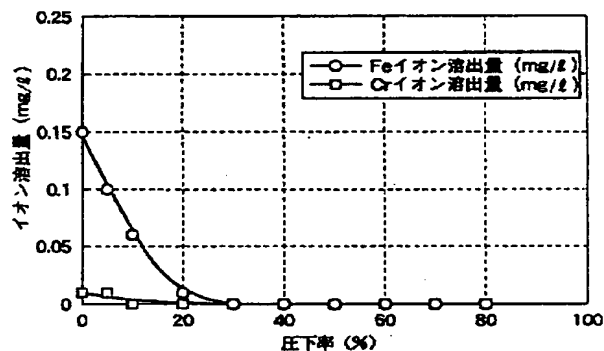
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 接触電気抵抗が低く、耐食性が改善され、かつコストが低い固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法を提供すること。

【解決手段】 Fe基合金等の金属板の表面上にAu等の貴金属層を有し、これらが5%以上の圧下率で圧延加工をされてクラッド化されたものであり、更に燃料ガス又は酸化性ガスを通ず流路が設けられていることを特徴とする固体高分子型燃料電池用金属セパレータ。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属板の表面上に貴金属層を有し、これらが5%以上の圧下率で圧延加工をされてクラッド化されたものであり、更に燃料ガス又は酸化性ガスを通ず流通路が形成されていることを特徴とする固体高分子型燃料電池用金属セパレータ。

【請求項2】 金属板の表面上に貴金属層を有し、これらが5%以上の圧下率で圧延加工をされてクラッド化され、更に圧延加工によって生じた加工硬化が熱処理によって除去されたものであり、また燃料ガス又は酸化性ガスを通ず流通路が形成されていることを特徴とする固体高分子型燃料電池用金属セパレータ。

【請求項3】 上記金属板が鉄基合金、Ni基合金、Ti又はTi基合金であることを特徴とする請求項1又は請求項2記載の固体高分子型燃料電池用金属セパレータ。

【請求項4】 上記貴金属がAu、Ag、Pt、Pd及びこれらの金属の合金のうちの1種又は2種以上であることを特徴とする請求項1ないし請求項3のいずれか1項記載の固体高分子型燃料電池用金属セパレータ。

【請求項5】 金属板の表面上に貴金属を被覆し、これらを5%以上の圧下率で圧延加工をしてクラッド化し、更に燃料ガス又は酸化性ガスを通ず流通路を形成する加工をすることを特徴とする固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法。

【請求項6】 金属板の表面上に貴金属を被覆し、これらを5%以上の圧下率で圧延加工をしてクラッド化し、更にこの圧延加工によって生じた加工硬化を除去する熱処理をし、また燃料ガス又は酸化性ガスを通ず流通路を形成する加工をすることを特徴とする固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法。

【請求項7】 上記金属板が鉄基合金、Ni基合金、Ti又はTi基合金であることを特徴とする請求項5又は請求項6記載の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法。

【請求項8】 上記貴金属がAu、Ag、Pt、Pd及びこれらの金属の合金のうちの1種又は2種以上であることを特徴とする請求項5ないし請求項7のいずれか1項記載の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法、詳細には耐食性、密着性、接触電気抵抗等が改善された固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】固体高分子型燃料電池用金属セパレータは、単位電池の電極と隣り合う単位電池の電極とが接触して電氣的に接続し、かつ反応ガスを分離する作用をす

るものであるので、導電性が高く、さらに反応ガスに対してガス気密性が高いことが必要であり、また水素/酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持つ必要があるものである。

【0003】従来、固体高分子型燃料電池用金属セパレータとして、黒鉛等のカーボン板を切削することによって燃料ガス又は酸化性ガスを通ず多数の凹凸状の溝を形成して作製したものが知られている。しかし、この方法で製造すると、カーボン板の材料コストと切削するためのコストが嵩み、実用化するにはコストが高過ぎるという問題があった。

【0004】さらに、固体高分子型燃料電池用金属セパレータとして、ステンレス鋼板にプレス加工により燃料ガス又は酸化性ガスを通ず多数の凹凸状の溝を形成し、その後露出先端側端面に金メッキを直接0.01~0.02μmメッキしたものが特開平10-228914号公報に開示されている。また、SUS316板にプレス加工により燃料ガス又は酸化性ガスを通ず多数の凹凸状の溝を形成し、この表面にニッケルストライクメッキ、ニッケルメッキ及び金メッキをしたものが特開2000-21418号公報に開示されている。

【0005】しかし、従来の製造方法のように溝を形成した後メッキ等の表面処理をすると、基材とメッキ膜との間に隙間が発生し易く、かつ溝のエッジ部分にメッキ膜が付き難く、耐食性に問題があった。また、メッキ膜はポーラス構造であるため、基材との密着力が弱く、更にメッキ膜が薄いとピンホールが存在するので耐食性が低く、またメッキ膜がポーラス構造であり、かつピンホールが存在するためにメッキ膜の厚さを薄くすることができないので、コストが高くなるという問題があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、接触電気抵抗が低く、耐食性が改善され、かつコストの低い固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法を提供することを課題とするものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため、本発明者らは、耐食性及び接触電気抵抗が改善され、かつコストの低い固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法について鋭意研究したところ、貴金属のメッキ等の皮膜で表面被覆をした基材を皮膜と共に圧延すれば、クラッド材と同程度の密着力が得られ、皮膜のポーラス構造が緻密化すると共にピンホールが閉孔するために耐食性が改善されること、密着力が高くなるので、その後塑性加工により燃料ガス又は酸化性ガスを通ず流通路を形成しても皮膜が剥離しないこと、耐食性が改善されるために皮膜を薄くすることができるのでコストが低くなること、表面に貴金属の皮膜からなる貴金属層を設けているので、接触電気抵抗が低いこと等の知見を得た。本発明は、これらの知見に基づいて発

明をされたものである。

【0008】すなわち、上記課題を解決するため、本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータにおいては、鉄基合金、Ni基合金、Ti、Ti基合金等の金属板の表面上にAu、Ag、Pt、Pd、これらの金属の合金等の貴金属層を有し、これらが5%以上の圧下率で圧延加工をされてクラッド化されたものであり、更にプレス加工等で燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路が形成されているものとしたことである。

【0009】また、上記課題を解決するため、本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータにおいては、鉄基合金、Ni基合金、Ti、Ti基合金等の金属板の表面上にAu、Ag、Pt、Pd、これらの金属の合金等の貴金属層を有し、これらが5%以上の圧下率で圧延加工をされてクラッド化され、更に圧延加工によって生じた金属板等の加工硬化が、皮膜が拡散消失せず、かつ基材に適した条件での熱処理によって除去されたものであり、またプレス加工等で燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路が設けられたものとしたことである。

【0010】上記課題を解決するため、本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法においては、鉄基合金、Ni基合金、Ti、Ti基合金等の金属板の表面上にAu、Ag、Pt、Pd、これらの金属の合金等の貴金属を被覆し、これらを5%以上の圧下率で圧延加工をしてクラッド化し、更に燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路を形成するプレス加工等の加工をすることである。

【0011】また、上記課題を解決するため、本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法においては、鉄基合金、Ni基合金、Ti、Ti基合金等の金属板の表面上にAu、Ag、Pt、Pd、これらの金属の合金等の貴金属を被覆し、これらを5%以上の圧下率で圧延加工をしてクラッド化し、更に圧延加工によって生じた金属板等の加工硬化を皮膜が拡散消失せず、かつ基材に適した条件での熱処理によって除去し、その後燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路を形成するプレス加工等の加工をすることである。

【0012】

【作用】本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法は、鉄基合金、Ni基合金、Ti、Ti基合金等の金属板の表面上に設けたAu、Ag、Pt、Pd、これらの金属の合金等の皮膜を金属板と共に圧延加工をしてクラッド化するため、クラッド材と同程度の密着力が得られ、貴金属層のポーラス構造が緻密化されると共にピンホールが閉孔されるので、耐食性が改善される。さらに、耐食性が改善されているため、Au等の上記貴金属層を薄くすることができるので、コストが低くなる。また、表面にAu等の上記貴金属層が設けられているので、耐食性が優れていると共に接触電気抵抗が低くなり、また加工硬化を除去する熱処理をしてい

るものは、加工性等が優れたものとなる。

【0013】

【発明の実施の形態】次に、本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータ及びその製造方法を詳細に説明する。先ず、本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータについて説明する。本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータは、金属板の表面上に貴金属層を有し、これらが5%以上の圧下率で圧延加工をされてクラッド化され、更にプレス加工等で燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路が形成されているもの、又はクラッド化された後、更に圧延加工によって生じた加工硬化が熱処理によって除去され、またプレス加工等で燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路が設けられているものであるが、上記金属板は、Fe又はFe基合金板、Ni又はNi基合金板、Ti又はTi基合金板、Cu又はCu基合金板、Al又はAl基合金板等である。これらのうちFe基合金板、Ni基合金板、Ti又はTi基合金板が耐食性、強度等の点で好ましい。また鉄基合金の中ではSUS430等のフェライト系ステンレス鋼板又はSUS304、SUS316等のオーステナイト系ステンレス鋼板が耐食性に優れており、加工性及びコストから最も好ましい。その厚さは通常0.05～1.0mm程度である。

【0014】上記金属板の表面上に設ける貴金属層は、Au、Ag、Pt、Pd、Rh、Ru、Ir、Os等の貴金属の単体金属又はこれらの合金、すなわち貴金属同士の合金及び卑金属との合金を一層又は複数層重ねたもの等からなり、通常表面と裏面の両面に設けられているものである。また、これらの貴金属のうち、Au、Ag、Pt、Pd及びこれらの金属の合金が耐食性、皮膜の成形性、被圧延性、コスト等から好ましい。またこれらのうちでは、耐食性及び展延性に優れ、かつ電気伝導度が高いことからAu及びPtが最も好ましい。

【0015】金属板の表面上に設けるAu、Pt、Pd、Ag、これらの金属の合金等の貴金属層の厚さは、使用したことにより摩耗されないで、表面に均一に被覆されていれば、測定できない程度に薄くてもよいが、耐食性を考慮すると圧延加工した後0.001μm以上あるのが好ましい。その上限は、特に限定されないが、コスト等を考慮すると1.0μm以下が好ましい。

【0016】本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路は、通常2～6mmピッチで幅が1～3mm、深さが0.5～3.0mmのものであり、プレス加工、図1に示すような2個のデザインロールを用いて圧延すること等で形成することができる。なお、貴金属層を設ける方法、圧延加工方法、熱処理方法については、下記の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法の説明において行う。

【0017】次に、本発明の固体高分子型燃料電池用金

属セパレータの製造方法について説明する。本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法の一つは、金属板の表面に貴金属を被覆し、これらを5%以上の圧下率で圧延加工をしてクラッド化し、更に燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路を形成する加工をすることであり、また他の一つは上記圧延加工をしてクラッド化した後、更にこの圧延加工によって生じた金属板等の加工硬化を除去する熱処理をし、燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路を形成する加工をすることであるが、上記金属板、貴金属、貴金属層の厚さについては既に説明したのでここでは省略する。

【0018】上記金属板の表面に貴金属を被覆する方法（貴金属層を設ける方法）は、真空蒸着、スパッタリング、イオンプレーティング等のPVD処理、CVD処理及び電気メッキ、無電解メッキ等のメッキ処理のうちの何れでもよいが、電気メッキが容易でコストも低いので好ましい。

【0019】上記圧延加工は、金属板の表面に被覆された貴金属の皮膜を密着し、かつ皮膜のポーラス構造を緻密化すると共にピンホールを閉孔して耐食性を改善するために行うもので、普通の圧延ロールを用いて圧延することによって行うことができる。これらの作用効果を得るためには図2に示すように圧下率を5%以上、好ましくは30%以上にすることである。圧下率を5%以上にすれば、金属板のFeイオン等の溶出量が急激に低下し、30%以上にすれば、溶出量が0.01mg/l未満になるからである。さらに、上記燃料ガス又は酸化性ガス、すなわち燃料ガス、酸化性ガス、燃料ガス及び酸化性ガスを通す流通路を形成する加工は、流通路に対応する形状にした金型を用いてプレス加工により行うことができるし、また図1に示すように2個の溝付きのデザインロールを用いて行うことができる。

【0020】また、上記熱処理は、上記圧延加工をしたことにより生じた加工硬化を除去し、加工性等を改善するためのもので、その温度は下記温度に限定されるわけではないが、図3に示すように金属板がFe又はFe基合金及びNi又はNi基合金の場合には700℃以下、図には示されていないがTi又はTi基合金の場合には700℃以下、Cu又はCu基合金の場合には500℃以下、Al又はAl基合金の場合には300℃以下の熱処

理温度で軟化処理を行って加工硬化を除去することができ、また金属板の金属イオンの溶出もわずかである。

【0021】以下、本発明の実施例を説明する。

#### 【実施例】実施例1

本発明の実施例及び比較例として、板厚0.3mmのSUS430板の両表面に下記表1に示す厚さの貴金属又は合金の皮膜を電気メッキにて形成し、下記表1に示す圧下率で皮膜と金属板とを一緒に圧延してクラッド化して貴金属層を有する供試材を作製した。これらの供試材から硬さ試験片、接触電気抵抗試験片、密着力試験片及び耐食性試験片を採取し、金属板の表面の硬さを測定し、また下記方法で密着力試験、接触電気抵抗試験及び耐食性試験を行った。その結果を下記表1に示す。また、本発明例 No. 1～9 及び比較例 No. 1 を用いて圧延加工の圧下率と耐食性試験の結果の関係を図2に示す。なお、表中のAg/Pd は、Ag70%とPd30%の合金のことである。

#### 【0022】(1) 耐食性試験

0.1wt%の硫酸液(pH2)0.4リットルを還流しながら沸騰させた雰囲気中に、40×50mmの試験片を168時間保持し、溶液中に溶出した金属イオンを原子吸光光度法で分析し、溶液1リットル当たりの重量で表した。

#### (2) 密着力試験

上記耐食性試験を実施した直後の試験片を用い、この試験片の表面を超純水で洗浄後にアセトン置換して乾燥し、乾いた試験片の貴金属層面に幅18mm、長さ50mmの粘着テープを張り付け、爪でよく擦って接着させた。図4に示すように粘着テープの一端を少し引き上げ、該貴金属層面に対してほぼ平行になるようにして一気に引き剥がした。判定は、該貴金属層が粘着テープに少しでも付着していれば評価を×とし、全く付着していなければ評価を○とした。

#### (3) 接触電気抵抗試験

17×17mmの測定試験片の両面をカーボンペーパーで挟み、荷重24kgf/cm<sup>2</sup>、印加電流90mAを流した時の電圧を測定して、接触電気抵抗を測定した。

#### 【0023】

#### 【表1】

表 1

No	金属板		皮膜		圧下率 %	熱処理 温度 (°C)	熱処理前 の硬さ (HV)	熱処理後 の硬さ (HV)	密着力	接触電気抵抗 (mΩ/cm <sup>2</sup> )	耐食性試験 (mg/ℓ)	
	材質	厚み (mm)	材質	厚み (μm)							Fe	Cr
1	SUS430	0.3	Au	0.1	5	—	189	—	〇〇〇〇〇	2.3	0.10	0.01
2	"	"	"	"	10	—	213	—	〇〇〇〇〇	2.3	0.08	<0.01
3	"	"	"	"	20	—	230	—	〇〇〇〇〇	2.3	0.01	<0.01
4	"	"	"	"	30	—	244	—	〇〇〇〇〇	2.4	<0.01	<0.01
5	"	"	"	"	40	—	254	—	〇〇〇〇〇	2.4	<0.01	<0.01
6	"	"	"	"	50	(700)	265	(175)	〇〇〇〇〇	2.4	<0.01	<0.01
7	"	"	"	"	60	—	276	—	〇〇〇〇〇	2.5	<0.01	<0.01
8	"	"	"	"	70	—	283	—	〇〇〇〇〇	2.6	<0.01	<0.01
9	"	"	"	"	80	—	294	—	〇〇〇〇〇	2.6	<0.01	<0.01
10	"	"	Pt	"	50	—	285	—	〇〇〇〇〇	3.1	<0.01	<0.01
11	"	"	Ag	"	50	—	284	—	〇〇〇〇〇	2.5	<0.01	<0.01
12	"	"	Pd	"	50	—	285	—	〇〇〇〇〇	2.9	<0.01	<0.01
13	"	"	Ag/Pd	"	50	—	266	—	〇〇〇〇〇	2.7	<0.01	<0.01
1	"	"	なし	—	0	—	150	—	—	38.7	0.35	0.02
2	"	"	Au	0.1	0	—	151	—	—	2.8	0.15	0.01
3	"	"	"	0.5	0	—	150	—	—	2.3	0.10	0.01
4	"	"	Pt	0.1	0	—	152	—	—	3.0	0.18	0.01
5	"	"	"	0.5	0	—	151	—	—	3.0	0.13	0.01
6	"	"	Ag	0.1	0	—	152	—	—	2.4	0.20	0.01
7	"	"	Pd	"	0	—	153	—	—	2.8	0.18	0.01
8	"	"	Ag/Pd	"	0	—	152	—	—	2.6	0.18	0.01

皮膜材質の Ag/Pd は、Ag70% と Pd30% の合金のことである。  
 本発明例 6 の熱処理温度及び熱処理後の硬さは参考であり、耐食性試験値等は熱処理をしなかったものの結果である。

## 【0024】実施例2

本発明の実施例及び比較例として、板厚 0.3mm の 80Ni-20Cr 板又は純 Ti 板の両表面に下記表 2 に示す厚さの貴金属又は合金の皮膜を電気メッキにて形成し、下記表 2 に示す圧下率で皮膜と金属板とを一緒に圧延してクラッド化して貴金属層を有する供試材を作製した。これらの供試材から実施例 1 と同様に硬さ試験片、

接触電気抵抗試験片、密着力試験片及び耐食性試験片を採取し、金属板の表面の硬さを測定し、また上記方法で密着力試験、接触電気抵抗試験及び耐食性試験を行った。その結果を下記表 2 に示す。

## 【0025】

## 【表 2】

表 2

No	金属板		皮膜		圧下率 (%)	熱処理 温度 (°C)	熱処理前の 硬さ (HV)	熱処理後の 硬さ (HV)	密着力	接触電気抵抗 (mΩ/cm <sup>2</sup> )	耐食性試験 (mg/l)		
	材質	厚み (mm)	材質	厚み (μm)							Ni	Cr	Ti
14	80Ni-20Cr	0.3	Au	0.1	50	(800)	370	(179)	〇〇	2.6	<0.01	<0.01	—
15	"	"	Pt	"	50	—	371	—	〇〇	3.1	<0.01	<0.01	—
16	"	"	Ag	"	50	—	371	—	〇〇〇〇〇〇	2.7	<0.01	<0.01	—
17	"	"	Pd	"	50	—	368	—	〇〇〇〇〇〇	3.1	<0.01	<0.01	—
18	"	"	Ag/Pd	"	50	—	368	—	〇〇〇〇〇〇	2.9	<0.01	<0.01	—
19	純Ti	"	Au	"	50	—	203	—	〇〇〇〇〇〇	2.4	<0.01	<0.01	<0.01
20	"	"	Pt	"	50	—	209	—	〇〇〇〇〇〇	3.0	—	—	<0.01
21	"	"	Ag	"	50	—	206	—	〇〇〇〇	2.5	—	—	<0.01
22	"	"	Pd	"	50	—	204	—	〇〇〇〇	2.9	—	—	<0.01
23	"	"	Ag/Pd	"	50	—	207	—	〇〇〇〇	2.7	—	—	<0.01
9	80Ni-20Cr	"	なし	—	0	—	175	—	—	6.3	0.14	0.01	—
10	"	"	Au	0.1	0	—	174	—	×	2.5	0.08	<0.01	—
11	"	"	"	0.5	0	—	176	—	×	2.4	0.02	<0.01	—
12	"	"	Pt	0.1	0	—	177	—	×	3.1	0.04	<0.01	—
13	"	"	"	0.5	0	—	175	—	×	3.1	0.02	<0.01	—
14	"	"	Ag	0.1	0	—	175	—	×	2.6	0.10	0.01	—
15	"	"	Pd	"	0	—	177	—	×	2.8	0.08	0.01	—
16	"	"	Ag/Pd	"	0	—	174	—	×	2.9	0.08	0.01	—
17	純Ti	"	なし	—	0	—	112	—	×	141	—	—	<0.01
18	"	"	Au	0.1	0	—	113	—	×	8.9	—	—	<0.01
19	"	"	"	0.5	0	—	110	—	×	4.3	—	—	<0.01
20	"	"	Pt	0.1	0	—	112	—	×	11.2	—	—	<0.01
21	"	"	Ag	"	0	—	110	—	×	9.3	—	—	<0.01
22	"	"	Pd	"	0	—	112	—	×	10.6	—	—	<0.01
23	"	"	Ag/Pd	"	0	—	112	—	×	10.0	—	—	<0.01

皮膜材質の Ag/Pd は、Ag70% と Pd30% の合金である。耐食性試験値等は熱処理をしないものの結果である。

### 【0026】実施例3

実施例1及び実施例2の本発明例6、10、14、15、19、20のクラッド化して作製した貴金属層を有する供試材を用いてプレス法により図5に示すような6mmピッチで幅が2mm、深さが1.0mmの溝を形成して32mm×32mmの固体高分子型燃料電池用金属セパレータを作製した。この固体高分子型燃料電池用金属セパレータを試験片として下記方法で接触電気抵抗試験及び耐食性

試験を行った。その結果を下記表3に示す。

### 【0027】(1) 接触電気抵抗試験

上記32×32mmの固体高分子型燃料電池用金属セパレータの試験片(接触有効面積3.20cm<sup>2</sup>)の両面をカーボンペーパーで挟み、荷重24kgf/cm<sup>2</sup>、印加電流100mA(電流密度31mA/cm<sup>2</sup>)を流した時の電圧を測定して、接触電気抵抗を測定した。

### (2) 耐食性試験



上記32×32mmの固体高分子型燃料電池用金属セパレータの試験片2枚を同じ容器内に入れ、0.1wt%の硫酸液(pH2)0.4リットルを還流しながら沸騰させた雰囲気中で168時間保持し、溶液中に溶出した金

表 3

	No.	金属板		皮 膜		圧下率 (%)	溝成形後 の剝離	接触電気抵抗 (mΩ/cm <sup>2</sup> )	耐食試験 (mg/ℓ)			
		材 質	厚 み (mm)	材 質	厚 み (μm)				Fe	Cr	Ni	Ti
本 発 明 例	24(6)	SUS430	0.3	Au	0.1	50	なし	2.4	<0.01	<0.01	—	—
	25(10)	"	0.3	Pt	0.1	50	なし	3.3	<0.01	<0.01	—	—
	26(14)	80Ni-20Cr	0.3	Au	0.1	50	なし	2.5	—	<0.01	<0.01	—
	27(15)	"	0.3	Pt	0.1	50	なし	3.2	—	<0.01	<0.01	—
	28(19)	純Ti	0.3	Au	0.1	50	なし	2.5	—	—	—	<0.01
	29(20)	"	0.3	Pt	0.1	50	なし	3.3	—	—	—	<0.01

本発明例のNo.の欄の括弧内の数字は、溝成形前のものが本発明例の括弧内の数字のものと同一であることを示す。

## 【0029】実施例4

上記実施例1において作製した本発明例 No. 6 及び実施例2において作製した本発明例14の供試材を下記表4に示す熱処理温度に15分間加熱し、その後空冷して供試材を作製した。これらから硬さ試験片及び耐食性試験片

表 4

熱処理温度 (°C)	本発明例No.6			本発明例No.14		
	熱処理後の硬さ (HV)	耐食性試験 (溶出値) mg/ℓ		熱処理後の硬さ (HV)	耐食性試験 (溶出値) mg/ℓ	
		Fe	Cr		Ni	Cr
25	266	<0.01	<0.01	255	<0.01	<0.01
100	265	<0.01	<0.01	257	<0.01	<0.01
200	267	<0.01	<0.01	255	<0.01	<0.01
300	260	<0.01	<0.01	254	<0.01	<0.01
400	259	0.01	<0.01	246	<0.01	<0.01
500	204	0.02	<0.01	199	0.01	<0.01
600	172	0.05	<0.01	179	0.01	<0.01
700	159	0.08	0.01	175	0.03	<0.01
800	151	0.17	0.01	177	0.07	0.01
900	150	0.35	0.02	173	0.14	0.01

熱処理時間=15分

【0031】表1の結果より、本発明例は、密着力試験での貴金属層の剝離がなく、接触電気抵抗がいずれも3.1mΩ/cm<sup>2</sup>以下であり、また耐食性試験におけるFeの溶出量が0.10mg/ℓ以下、Crの溶出量が0.01mg/ℓ以下であった。これに対して、貴金

属イオンを原子吸光光度法で分析し、溶液1リットル当たりの重量で表した。

【0028】

【表3】

を採取し、金属板の表面の硬さを測定し、また上記実施例1の方法で耐食性試験を行った。その結果を下記表4及び図3に示す。

【0030】

【表4】

属をメッキしない比較例 No. 1は、接触電気抵抗が36.7mΩ/cm<sup>2</sup>であり、また耐食性試験におけるFeの溶出量が0.35mg/ℓ、Crの溶出量が0.02mg/ℓであった。また、貴金属をメッキした後圧延加工をしなかった比較例 No. 2～8のものは、いずれも

密着力試験において貴金属層の剥離が有り、耐食性試験におけるFeの溶出量が0.10~0.20mg/l、Crの溶出量が0.01mg/lであった。

【0032】表2の結果より、本発明例は、密着力試験での貴金属層の剥離がなく、接触電気抵抗がいずれも $3.1\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ 以下であり、また耐食性試験におけるNi、Cr及びTiの溶出量が何れも0.01mg/l未満であった。これに対して、貴金属をメッキしない比較例 No. 9 (金属板は80Ni-20Cr)は、接触電気抵抗が $6.3\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ であり、また耐食性試験におけるNiの溶出量が0.14mg/l、Crの溶出量が0.01mg/lであった。さらに、貴金属をメッキしない比較例 No. 17 (金属板は純Ti)は、接触電気抵抗が $14.1\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ であり、また耐食性試験におけるTiの溶出量が0.01mg/l未満であった。また、貴金属をメッキした後圧延加工をしなかった比較例 No. 10~16及び18~23のものは、いずれも密着力試験において貴金属層の剥離が有り、耐食性試験におけるNiの溶出量が0.02~0.10mg/l、Crの溶出量が0.01mg/l以下、Tiの溶出量が0.01mg/l未満であった。

【0033】表3の結果より、本発明例は、いずれも溝形成後においても角部の貴金属層の剥離がなく、さらに溝形成後における接触電気抵抗が変化することなく低いままであり、また耐食性試験におけるFe、Cr、Ni及びTiの溶出量も変化することなく少ないままであり、固体高分子型燃料電池用金属セパレータとして良好であった。

【0034】表4及び図2の結果より、金属板がSUS430である場合には、700℃以上で熱処理をすれば、硬さ159HV以下ではほぼ一定になるが、800℃以上で熱処理をすると、耐食性試験におけるFe及びCrの溶出量が圧延加工及び熱処理をしなかった比較例2のものより多くなる傾向があるので、700℃以下で熱

処理をするのが好ましいことが判る。また、金属板が80Ni-20Crの場合には、600℃以上で熱処理をすれば、硬さ179HV以下ではほぼ一定になるが、800℃以上で熱処理をすると、耐食性試験におけるNiの溶出量が圧延加工及び熱処理をしなかった比較例10のものより多くなる傾向があるので、700℃以下、好ましくは600℃以下で熱処理をするのが好ましいことが判る。

#### 【0035】

【効果】本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータは、上記構成にしたことにより、接触抵抗が低く、さらにクラッド材と同程度の密着力があり、かつ貴金属層のポーラス構造が緻密化すると共にピンホールが閉孔するので、耐食性が改善され、また耐食性が改善されているため、貴金属層を薄くすることができるので、コストが低いという優れた効果を奏する。また、本発明の本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの製造方法は、上記構成にしたことにより、上記のとおり優れた固体高分子型燃料電池用金属セパレータを製造することができるという効果を奏する。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の固体高分子型燃料電池用金属セパレータの燃料ガス又は酸化性ガスを通す流通路を形成するための方法の一例を示す概念図である。

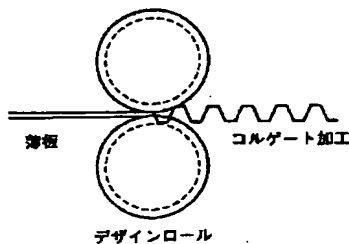
【図2】SUS430板にAuをメッキしたものの圧延加工の圧下率とイオン溶出量との関係を示すグラフである。

【図3】SUS430板及び80Ni-20Cr板にAuをメッキしたものの熱処理温度とイオン溶出量との関係を示すグラフである。

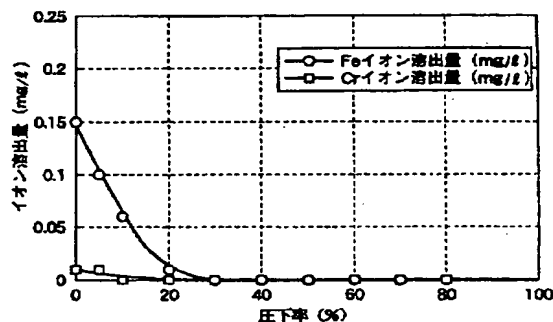
【図4】本発明の実施例で行った密着力試験の方法を説明するための概念図である。

【図5】本発明の実施例において作製した固体高分子型燃料電池用金属セパレータの斜視図である。

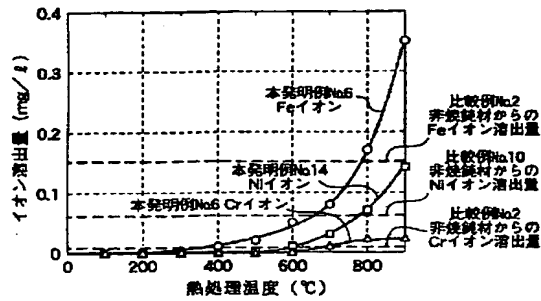
【図1】



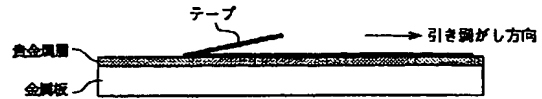
【図2】



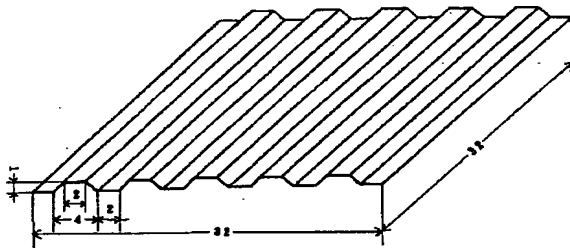
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターム(参考)
// C 2 2 F 1/00	6 2 7	C 2 2 F 1/00	6 2 7
	6 3 0		6 3 0 K
	6 9 1		6 9 1 B
	6 9 4		6 9 4 A
(72)発明者 高木 忍 愛知県名古屋市南区大同町二丁目30番地 大同特殊鋼株式会社技術開発研究所内		Fターム(参考) 5H026 AA06 BB00 BB01 BB02 BB04 CC03 EE02 EE08 HH03 HH05 HH06 HH08	